



MEDIDA DE LARGURA TEMPORAL DE PULSOS LASER DE FEMTOSSEGUNDOS USANDO EMISSÃO POR ABSORÇÃO DE DOIS FÓTONS

Palavras-Chave: laser pulsado, espectroscopia, nanomateriais

Autores(as):

Caio César Coelho Tavares, IFGW – Unicamp

Prof. Dr. Prof. Dr. Lázaro A. Padilha Jr. (**orientador**), IFGW - Unicamp

Arthur Aló de Oliveira (**coorientador**), IFGW - Unicamp

INTRODUÇÃO:

A tecnologia laser, acrônimo de *Light Amplification by Stimulated Emission Radiation*, surgiu na segunda metade do século XX, sendo premeditada por estudos teóricos de Albert Einstein. Após décadas de refinamento dessa técnica de geração de luz por emissão estimulada, hoje laboratórios de ótica têm acesso a fontes laser que emitem pulsos de luz com duração de até sub picossegundos. Nessa escala temporal, é possível realizar experimentos de absorção e fotoluminescência como meios de medir diretamente a dinâmica de portadores de carga excitados, atividade que exige resolução típica mais curta que 100 fs.

Nesse contexto, medir a largura temporal do pulso de uma fonte de laser pulsado é fundamental em estudos de eletrônica quântica. No entanto, devido à curtíssima duração de cada pulso (na escala de dezenas de femtossegundos), fazer sua medição é um grande desafio para detectores eletrônicos ou qualquer instrumento humano conhecido no geral. A solução desse problema está na utilização do próprio pulso laser para fazer sua medida, técnica chamada de autocorrelação, que foi estudada neste projeto, com foco na montagem experimental. A versão da técnica utilizada aqui foi baseada na Absorção de Dois Fótons com *quantum-dots* (uma categoria nanomaterial semiconductor), que requer um alinhamento menos exigente do que a versão com Geração de Segundo Harmônico com cristal dedicado.

METODOLOGIA:

A método deste projeto consistiu na montagem de um autocorrelador baseado no fenômeno de Absorção de Dois Fótons (*Two Photon Absorption*, TPA). Para isso, foi adaptado um autocorrelador de Geração de Segundo Harmônico (*Second Harmonic Generation*, SHG) do laboratório USL do Photonicamp para a coleta de fotoluminescência de uma amostra de SQW, um tipo *quantum-dot*, que apresenta TPA, um fenômeno de ótica não-linear de terceira ordem. Serão passados aqui a explicação teórica para o cálculo da largura de pulso, depois a montagem experimental escolhida para gerar os dados para essa conta e por fim a explicação da escolha do material utilizado. A validade do resultado encontrado será baseada na comparação com um valor adquirido pela montagem experimental já funcional do autocorrelador baseado SHG. Foi possível ainda coletar e comparar os resultados de duas amostras de quantum dots com especificações diferentes.

A compreensão da relação entre o sinal de saída experimental do autocorrelador e o valor da largura de pulsos do laser original necessita da introdução da Fórmula da Autocorrelação de Segunda ordem (que não tem relação direta com a ordem da não-linearidade) em função de uma defasagem temporal entre os pulsos:

$$G^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_A(t)I_B(t + \tau)dt \quad , \quad (1)$$

em que I_A e I_B se referem às intensidades dos campos incidentes do laser. Além disso, é preciso considerar, como se faz usualmente, que essas intensidades são descritas por curvas gaussianas, com largura de pulso σ ,

$$I_A(t) = I_0 e^{-\frac{t^2}{2\sigma^2}}, \quad I_B(t) = I_0 e^{-\frac{(t+\tau)^2}{2\sigma^2}}, \quad (2)$$

situação em que a Fórmula de Autocorrelação resulta em

$$G^{(2)}(\tau) = I_0^2 \sqrt{2\pi} \sigma e^{-\frac{\tau^2}{4\sigma^2}}, \quad (3)$$

O que é interessante sobre esse resultado é ele também é uma curva gaussiana, porém difere das anteriores (além do módulo) por ter uma largura de pulso de $\sqrt{2} \sigma$, de forma que

$$\sigma_{auto} = \sqrt{2} \sigma_{laser} . \quad (4)$$

É possível, então, montar um experimento que nos permita confeccionar um gráfico de intensidade em função da defasagem τ e descobrir, por meio da Fórmula 4 citada qual a largura de pulso do laser que sai da fonte, o objetivo do estudo aqui presente. Após a coleta dos dados, é feito neles um ajuste linear gaussiano que já retorna o valor da largura de pulso do laser.

Será explicado a seguir a montagem experimental que torna possível a aquisição de dados desejada. Como pode ser visto na Figura 1, um feixe laser é dividido em duas partes iguais com um *beam*

splitter (do tipo 50-50), de modo que cada uma fica atrelada a um caminho ótico conduzido por espelhos. Em um dos caminhos existe um carrinho que, conforme se move, altera o comprimento total desse caminho (quando ele se desloca certa distância, o caminho é aumentado pelo dobro desse valor), assim é possível causar uma defasagem temporal entre os pulsos, fator que determina a intensidade da intensidade na fórmula de Autocorrelação de Segunda Ordem.

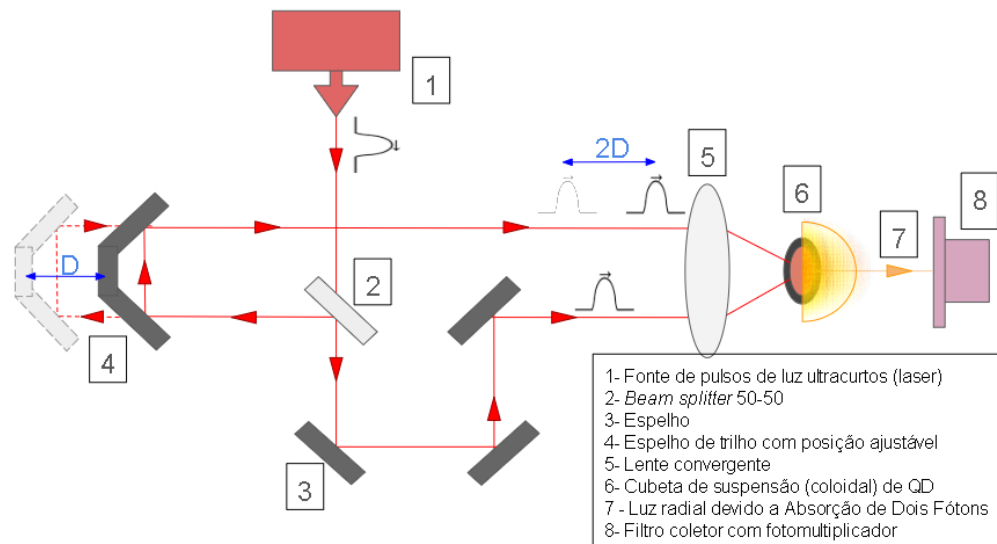


Figura 1: Autocorrelador por Absorção de Dois Fótons.

É preciso comentar alguns detalhes secundários: Lock-in é um aparelho que é capaz de isolar os sinais referentes aos pulsos individuais e mostrar apenas a luminescência devido a Absorção de Dois Fótons. Ele faz isso com auxílio do *chopper*, um disco giratório com fendas que deixam passar o sinal de um dos feixes ou de outro ou dos dois ao mesmo tempo; esse disco precisa ser alinhado na montagem para tal fim. Comparando esses sinais, ele consegue contribuir para reduzir o ruído ambiente e mostrar apenas o sinal de fotoluminescência por Absorção de Dois fótons.

Por fim, a escolha da amostra de *quantum dots* foi feita com base nas características que aumentam o *quantum yield* (que implica maior fotoluminescência aproveitável): alto Stokes Shift, condição que dificulta a reabsorção da luminescência gerada, e grandes dimensões 3D, que ajudam a capturar os fótons. Assim escolheu-se nesse sentido uma amostra de SQW (*Spherical Quantum Well*, Poço Quântico Esférico), composto de CdS/CdSe/CdS (*seed/SQW/shell*), já recorrente na literatura e que tem os atributos mencionadas. Foram utilizadas uma amostra “base”, usada usualmente para alinhamentos, e outra “definida”, com as especificações em nanômetros: $r=1,3$, $l=0,6$, $h_1=1,2$, $h_2=5,5$.

O estudo de incertezas ficou restrito às incertezas estatísticas associadas ao ajuste das curvas gaussianas nos dados.

RESULTADOS E DISCUSSÃO:

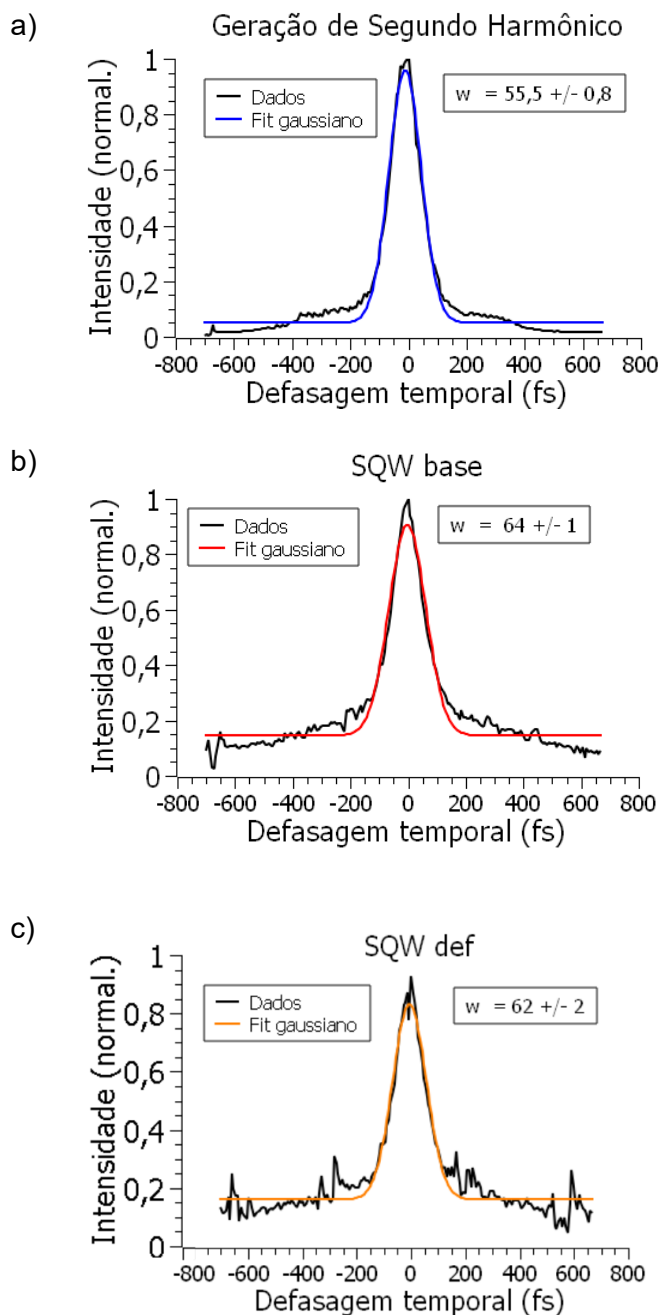


Figura 2: Gráficos de autocorrelação por (a) Geração de Segundo Harmônico, (b) usando uma amostra base de SQW, e (c) usando a amostra definida de SQW. Estão indicadas as larguras de pulso correspondentes a cada gráfico.

A coleta de dados de autocorrelação gerou os gráficos da Fig. XXX. Nela, podemos comparar os resultados das medições de Geração de Segundo Harmônico e duas amostras de SQW que utilizam Absorção de Dois Fótons.

Conforme as larguras de pulsos encontradas, é possível notar uma proximidade entre os resultados de SHG e os de SQW, que conferem uma validade razoável à técnica estudada neste projeto baseada em TPA.

É possível notar, no entanto, que os resultados de largura de pulso entre as técnicas não estão compreendidos num mesmo intervalo de incertezas. Isso pode ser atribuído à ausência de consideração de mais incertezas, a exemplo da variação da largura de pulso ao longo de um dia em função da variação de temperatura do laboratório. Além disso, é esperado segundo a literatura que os dados de Absorção de Dois Fótons sejam um pouco mais precisos do que os do outro processo, pois os dados de pulso por SHG dependem consideravelmente da orientação do cristal utilizado.

É válido comentar que o alinhamento da amostra alvo como SQW foi muito mais rápido e consistente do que com o cristal de Geração de Segundo Harmônico.

CONCLUSÕES:

Foi possível entender com realização do projeto que a autocorrelação baseada no fenômeno de ótica não-linear de Absorção de Dois Fótons é uma técnica funcional para a medição da largura de pulsos laser, apesar de necessitar de pequenos aprofundamentos em relação ao entendimento das fontes de incerteza associadas à montagem. Também, dado que uma amostra adequada de *quantum-dots* de SQW esteja disponível para utilização no experimento, é uma forma mais interessante de fazer a medição em relação à Geração de Segundo Harmônico porque esta última apresenta um alinhamento mais exigente, requisitando um alinhamento geométrico mais específico e vagaroso para gerar o feixe da autocorrelação.

BIBLIOGRAFIA

- M. T. Quick, N. Owschimikow, A. Hossain Khan, A. Polovitsyn, I. Moreels, U. Woggon and A.W. Achtstein, Two-photon based pulse autocorrelation with CdSe nanoplatelets, *Nanoscale* 11, 17293–17300 (2019).
- Chuang, C. H. & Burda, C. Contribution of Femtosecond Laser Spectroscopy to the Development of Advanced Optoelectronic Nanomaterials. *J. Phys. Chem. Lett.* 3, 1921-1927, doi:10.1021/jz300299r (2012).
- Kong, D.-G. et al. Measurement of Ultrashort Laser Pulse Width in a Wide Spectrum Range Using Dimethyl Sulfoxide by Optical Kerr Effect Technique. *Chinese Physics Letters* 27, doi:054209 10.1088/0256-307x/27/5/054209 (2010).
- Ogawa, K. Real-time intuitive spectrogram measurement of ultrashort optical pulses using two-photon absorption in a semiconductor. *Optics Express* 10, 262-267 (2002).
- KONSTANTATOS, Gerasimos; SARGENT, Edward H. *Colloidal Quantum Dot Optoelectronics*. Cambridge: Cambridge University Press, 2013.
- BOYD, R. W. *Nonlinear Optics*. 3. ed. Burlington: Academic Press, 2008.
- ALO, Arthur; LEMUS, Jonathan C.; SOUSA, Claudevan A.; NAGAMINE, Gabriel; PADILHA, Lazaro A. Two-photon absorption in colloidal semiconductor nanocrystals: a review. *Journal of Materials Chemistry C*, [s.l.], v. 8, n. 31, p. 10742-10755, 2020. Disponível em: <https://doi.org/10.1039/D0TC01525A>. Acesso em: [02/03/2025].